

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 60-054177

(43)Date of publication of application : 28.03.1985

(51)Int.Cl.

H01M 8/06

(21)Application number : 58-160914

(71)Applicant : HITACHI LTD

(22)Date of filing : 01.09.1983

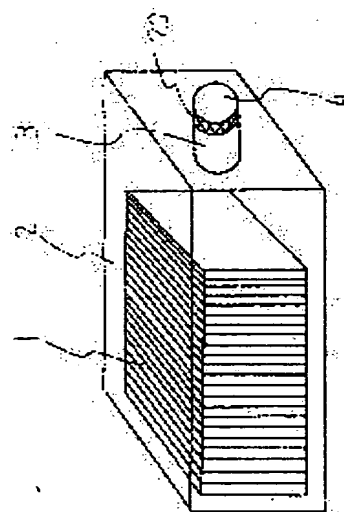
(72)Inventor : TAKEUCHI SEIJI  
IWAMOTO KAZUO  
KAWANA HIDEJIRO  
HORIBA TATSUO  
KUMAGAI TERUO  
KITAMI NORIKO  
KAMO YUICHI  
TAMURA KOKI

## (54) PORTABLE TYPE FUEL CELL

## (57)Abstract:

PURPOSE: To prevent decrease of gas diffusion of an oxidation electrode and maintained cell performance for a long time by catching dust or poisoning substances to electrode catalyst with a filter installed on the way of a supply path of oxidizing agent such as air.

CONSTITUTION: A cell stack 1 obtained by stacking unit cells in covered with a cell frame 2. An air blower 3 is installed in the cell frame 2, and air is supplied to air electrode side of the cell from an air inlet 4. An air cleaning filter 20 is installed in an air supply pipe which is arranged in the outside of the cell frame 2. The air cleaning filter 20 having activated carbon sandwiched between electret filters is preferable.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭60-54177

⑬ Int.Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 昭和60年(1985)3月28日

H 01 M 8/06

R-7268-5H

審査請求 未請求 発明の数 1 (全6頁)

⑮ 発明の名称 ポータブル型燃料電池

⑯ 特 願 昭58-160914

⑰ 出 願 昭58(1983)9月1日

⑱ 発 明 者 武 内 澁 士 日立市幸町3丁目1番1号 株式会社日立製作所日立研究所内

⑲ 発 明 者 岩 本 一 男 日立市幸町3丁目1番1号 株式会社日立製作所日立研究所内

⑳ 発 明 者 川 名 秀 治 郎 日立市幸町3丁目1番1号 株式会社日立製作所日立研究所内

㉑ 発 明 者 堀 場 達 雄 日立市幸町3丁目1番1号 株式会社日立製作所日立研究所内

㉒ 出 願 人 株式会社日立製作所 東京都千代田区神田駿河台4丁目6番地

㉓ 代 理 人 弁理士 鞆 沼 辰之 外2名

最終頁に続く

明 細 書

発明の名称 ポータブル型燃料電池

特許請求の範囲

1. 燃料極、酸化極及び電解質を備えた単電池を1つ以上積層した燃料電池の酸化剤供給路の途中にフィルタを介設したことを特徴とするポータブル型燃料電池。
2. 前記フィルタが、酸化剤中に含まれる塵埃及び電極触媒の被毒物質を除去する機能を有することを特徴とする特許請求の範囲第1項記載のポータブル型燃料電池。
3. 前記フィルタが、電池本体を囲繞するとともに電池本体に酸化剤を供給するためケーシングの外部に設けられた配管の途中に設けられていることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載のポータブル型燃料電池。
4. 前記酸化剤が、空気であることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載のポータブル型燃料電池。
5. 前記フィルタが、エレクトレットフィルタ又

は活性炭フィルタ或はこれらの組合せからなることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載のポータブル型燃料電池。

6. 前記フィルタが2つのエレクトレットフィルタによつて活性炭層を挟持したものである特許請求の範囲第5項記載のポータブル型燃料電池。

7. 前記電極が、導電性多孔質基材、電極触媒、撥水及び結着剤から成ることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載のポータブル型燃料電池。

8. 特許請求の範囲第1項における前記電解質が、酸性又はアルカリ性電解液或はこれらを含浸したマトリックスであることを特徴とする特許請求の範囲第7項記載のポータブル型燃料電池。

9. 燃料が水素ガス、天然ガス、水蒸気改質ガス、ヒドラジン又はメタノールであることを特徴とする特許請求の範囲第1項記載のポータブル型燃料電池。

10. 導電性多孔質基材が、カーボンペーパー又はカーボン多孔質板であることを特徴とする特許請求の範囲第7項記載のポータブル型燃料電池。

11. 前記電極触媒が、導電性微粉末に活性金属を担持して成ることを特徴とする特許請求の範囲第7項記載のポータブル型燃料電池。
12. 撥水及び結着剤が、ポリフルオロエチレン、ポリエチレン、ポリスチレン、ポリプロピレン及びポリメチルメタクリレートの内いずれかであることを特徴とする特許請求の範囲第7項記載のポータブル型燃料電池。
13. 電解質が、リン酸、硫酸、トリフルオロメタン磺酸又は苛性アルカリであり、マトリックスはイオン交換性を有する非導電性材料であることを特徴とする特許請求の範囲第8項記載のポータブル型燃料電池。
14. 導電性微粉末がグラファイト、フーネスブラック、活性炭、タングステンカーバイド又はタングステンブロンズであることを特徴とする特許請求の範囲第11項記載のポータブル型燃料電池。
15. 活性金属が、周期律表第8族と第1族から選ばれる少なくとも1種以上であることを特徴とする特許請求の範囲第11項記載のポータブル型燃

はない。しかしながら、メタノール燃料電池を家電用電源に適用する場合、コスト、取扱い、寿命及び触媒中の貴金属の回収等多くの問題がある。

特にポータブルタイプのメタノール燃料電池を家電用電源とし、酸化剤として空気を用いた場合、次のような問題がある。即ち、大気中には $0.01 \sim 10 \mu\text{m}$ 程度のダストが浮遊している。この空気をフローアで電池に送り込むと、電極のカーボンペーパーの多孔質の部分の目づまりにより、酸素の拡散が悪くなるため、空気極の性能が低くなり電池性能が低下する。更にはこのダストがカーボンペーパーを通して触媒層に達すると触媒層の活性金属(空気極では主にPt)により燃焼がおこる。その結果、触媒層は部分的に高温になり、その近傍に存在する白金粒子はシンタリングし、触媒そのものの性能は初期に比べて低下することになる。又ダストの燃焼熱によつて撥水剤として添加しているポリテトラフルオロエチレンの分解が進行し、電極の電解質による濡れが進行する結果、ガス拡散が悪くなり、電池性能が低下する。

料電池。

発明の詳細な説明

〔発明の利用分野〕

本発明はポータブル型燃料電池に係り、特に酸化剤に空気を用いる家電用電池として好適なポータブル型燃料電池に関する。

〔発明の背景〕

近年、家電品や産業用機器に適する新しい小型軽量可搬電源の開発が望まれている。これに応える電源の一つとして直接型メタノール燃料電池が挙げられる。この燃料電池は、燃料であるメタノールと酸化剤である空気中の酸素との化学反応のエネルギーを直接電気エネルギーに変換することから、(i)騒音が少ない、(ii)反応生成物が無害、(iii)燃料の保管及び供給が容易である等の点において他の可搬電源に比べて有利である。

メタノール燃料電池を産業用に適用する場合には、既存の燃料電池(例えば酸素-水素及びヒドラジーン-空気燃料電池)の技術を用いることによりコストの面を除いて実用化に際して大きな問題

更に空気、場合によつては他の酸化剤としてのガス中には電極中のPtを被毒する物質が含まれることがある。この被毒物質のうち特に注意しなければならないのは、Ptの永久被毒となる硫黄含有ガス、ハロゲンガス及び一酸化炭素等である。従つてポータブルタイプのメタノール燃料電池を実用化するためには、ダストや被毒物質による影響を小さくして電池の長寿命化を図る必要がある。

〔発明の目的〕

本発明の目的は、ダストや電極触媒の被毒物質による電池性能の低下を防止し、電池の長寿命化を図ることができるポータブル型燃料電池を提供することにある。

〔発明の概要〕

本発明は、空気等の酸化剤の供給路の途中にフィルタを設け、このフィルタによつてダストや電極触媒の被毒物質を捕集し、酸化極のガス拡散の低下を防止して電池性能を長期間維持しうるようにしたものである。

〔発明の実施例〕

ポータブル型メタノール燃料電池の概略を第1図に示す。第1図において、単電池を積層した電池スタック1を設け、この電池スタック1を電池枠(ケーシング)2で覆う。この電池枠2内に空気ブローア3を設置し空気入口4から電池の空気極側へ空気を供給する。この空気ブローア3は、空気供給の他電池の冷却の機能をも有するようになっている。

第2図は、単電池の概略の構成図を示す。

第2図において、電解質保持と燃料であるメタノールが空気極で直接酸化されないためのメタノール阻止の役目を合せもつイオン交換膜10の両側に夫々カーボンペーパーからなる触媒塗布基板7、13に触媒8、14を塗布した空気極とメタノール極を配置している。又夫々の電極の裏側には、空気供給及び燃料供給ができる構造になっている。即ち、空気極では、集電とセパレータを兼ねた黒鉛板5に空気流れ溝6を切り、この溝6へブローアから空気を送る機構になっている。一方メタノール極では、燃料タンクから毛細管作用によつて

用の燃料電池においては、エレクトレットフィルタは特に有効である。

このようなエレクトレットフィルタ2枚によつて活性炭を挟持する構造では、エレクトレットフィルタ自体が、活性炭の保持体としても働くので、小型化の高性能フィルタとして有効である。

本発明において、エレクトレットフィルタ<sup>の</sup>他に一般の家電機等に用いられるマット状繊維でもよい。又活性炭の代りに、硫黄含有ガス、ハロゲンガス、一酸化炭素等のガスを吸着しうる吸着剤を使用してもよい。

ポータブル型燃料電池において、酸化剤としては簡便さから通常空気が用いられる。しかし、ポータブル型燃料電池の設置場所によつては、空気以外の酸化剤が用いられることもあり、このような酸化剤でも被毒ガスが含有されることもありうる。この場合もフィルタとしては活性炭層によつて被毒ガスを吸着除去することが望ましい。

本発明において、電極は導電性多孔質基材、電極触媒、撥水及び結着剤からなるものが用いられ

燃料吸い上げ材15で燃料を供給する構造になっている。メタノール極の上下部には、反応で生成する炭酸ガスを放出する開口部12が設けられている。尚第2図中9はシール材、11は絶縁材である。

上記のような単電池を積層した電池スタックを有する本発明のポータブルタイプの燃料電池の一例を第3図に示す。第3図において、電池枠2の外部に設けられた空気供給用の配管内に空気浄化用フィルタ20が設けられている。

空気浄化用フィルタ20としては、特に2枚のエレクトレットフィルタの間に活性炭を挟持した構成が好適である。エレクトレットフィルタは製造時に外部電界を与えると電媒分極を生じ、静電的に空気中のダストを効率的に捕集できる。又エレクトレットフィルタはμ程度のダストを圧力損失の少ない条件で高効率に捕集できる。従つて、空気ブロー等の容量を小さくせざるを得ない条件下で、しかもフィルタを含む集塵装置自体を出来るだけ小型化せざるを得ない条件下にある家電

る。導電性多孔質基材はカーボンペーパーの他にカーボン多孔質板を用いることができる。電極触媒は導電性微粉末に活性金属を担持してなり、活性金属としては周期律表第8族と第1族bののうち少なくとも1種が用いられる。又撥水及び結着剤としては、ポリフルオロエチレン、ポリエチレン、ポリステレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート等が用いられる。

電解質は酸性電解液又はアルカリ性電解液或はこれらの電解液を含浸したマトリックスを挙げることができる。酸性電解液はリン酸、硫酸、トリフルオロメタンスルホン酸が用いられ、アルカリ性電解液には苛性アルカリが用いられる。又マトリックスにはイオン交換性を有する非導電性材料が有効である。燃料剤は、メタノールの他ヒドラジン等の液体燃料、或は水素ガス、天然ガス、水蒸気改質ガスなどの気体燃料が用いられる。

導電性微粉末としては、グラファイト、フアーネスブラック、活性炭、タングステンカーバイト、タングステンブロンズ等が用いられる。

第4図は、一般的なフィルタ（繊維状マット）とエレクトレットフィルタについて圧力負荷をかえたときのダスト除去率を示した。第4図にみられる如く、一般的に用いられているフィルタ（図中、Aで示す）は水中圧力で40 mm高さ以上でなければダスト除去率は100%にならない。これに対しエレクトレットフィルタ（図中、Bで示す）では、5 mm高さで100%除去できる。このことは燃料電池に用いる空気ブローアにかかる圧力負荷が、エレクトレットフィルタでは、繊維状マットのフィルタに対し1/8以下で良いということになる。

#### 実施例1

本実施例では、エレクトレットフィルタの煙の除去効果について検討した。煙の発生源としては線香の煙を用い、フィルタの空間速度を15,000に設定し、フィルタ間のガス流れ抵抗を水中圧で2.5 mm, 5.0 mm, 7.0 mmとしたときの煙の保持容量を測定した。その結果を第1表に示す。

空気極用の電極触媒は、ファーンズブラックであるVulcan XC-72 Rに白金を15 wt%担持したものを用い、メタノール極用の電極触媒は、人造黒鉛であるCSSPに白金を20 wt%, Ruを10 wt%担持したものを用いた。これらの電極触媒をカーボンペーパーに塗布焼成して空気極とメタノール極を得た。夫々の極での貴金属使用量は、0.9 mg Pt/cm<sup>2</sup>及び3 mg Pt/cm<sup>2</sup>と1.5 mg Ru/cm<sup>2</sup>である。

これらの電極から有効面積5 cm<sup>2</sup>になるように切り出し、3 mol/L H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> を含浸したイオン交換膜を用いて単電池を製作し、これを20セル積層してポータブルタイプの電池とした。電池枠のブローアの空気供給口に30φのエレクトレットフィルタを両側に配し中間に100メッシュ程度のヤシガラ炭を5 mm厚み充てんしたフィルタを設置し、空気はこのフィルタ層を通過して、空気極へ供給した。

運転は、60℃で行った。放電々流密度は60 mA/cm<sup>2</sup>である。その結果を第5図にAで示す。

第 1 表

水 中 圧 ( mm )	2.5	5.0	10.0
保持容量 ( g/m <sup>2</sup> )	1.8	4.0	9.5

図みに実施例1と全く同じ条件で、繊維状マットからなるフィルタについて測定した結果を第2表に示す。

第 2 表

水 中 圧 ( mm )	2.5	5.0	10.0
保持容量 ( g/m <sup>2</sup> )	2	5	12

以上の結果から、水中圧5 mm高さにおけるエレクトレットフィルタと繊維状マットからなるフィルタを比較すると、エレクトレットフィルタは、約8倍の保持容量がある。

#### 実施例2

本実施例では、ポータブル型燃料電池にエレクトレットフィルタを用いたときの電池の性能について測定した結果について述べる。

第5図にみられる如く、初期電圧7.6 Vであつたのに対し、200時間後では7.4 Vとなり、1セル当りの電圧の降下は5 mV/100 h程度であつた。

#### 比較例1

実施例2と全く同じ条件で、ブローア入口にフィルタを用いず大気開放の状態で作動した。

その結果、第5図にBで示した如く初期7.6 Vに対し200時間後では7.0 Vとなり、1セル当りの電圧の降下分は30 mV/100 hと大きいものであつた。

以上空気を酸化剤とする空気-メタノール酸性電解液型ポータブル燃料電池において、空気供給側に空気浄化フィルタを設置することで、電池の寿命を大幅に改良できることが可能となつた。

#### 〔発明の効果〕

以上のように本発明によれば、空気などの酸化剤に含まれるダストや触媒被毒物質は、酸化剤供給路の途中に設けられたフィルタにより捕捉されるので、ダストや触媒被毒物質による電池性能

を防止し、電池の長寿命化を図ることができる。

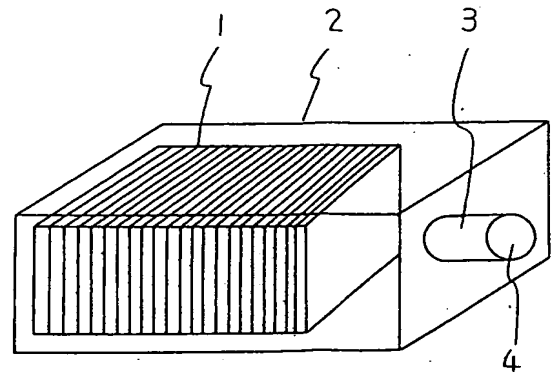
図面の簡単な説明

第1図はポータブルタイプのメタノール燃料電池の外観図、第2図は単電池の概略断面図、第3図は本発明の実施例を示すポータブルタイプ燃料電池の外観図、第4図は各種フィルタのダスト除去効率を示すグラフ、第5図は空気メタノール酸性電解液型ポータブル燃料電池の運転時間と性能の関係図である。

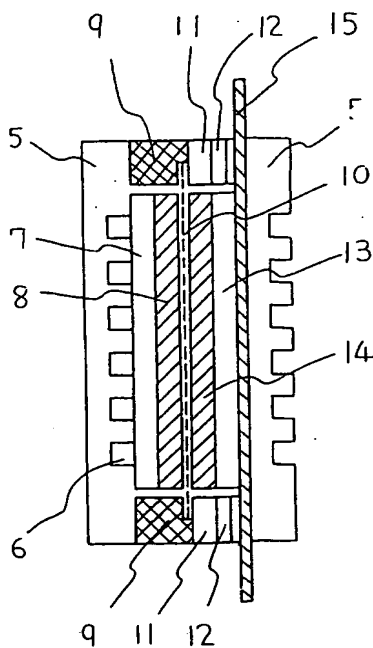
1…電池スタック、2…電池枠、3…空気プロア、4…空気入口、5…セパレータ及び集電板、6…空気流れ溝、7…触媒塗布基板、8…触媒層、9…シール材、10…イオン交換膜、11…絶縁材、12…開口部（炭酸ガス抜き口）、13…触媒塗布基板、14…触媒層、15…燃料吸い上げ材、20…空気浄化用フィルタ。

代理人 弁理士 鶴沼辰之

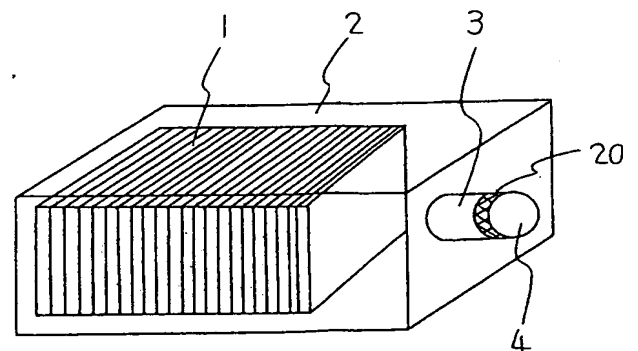
第1図



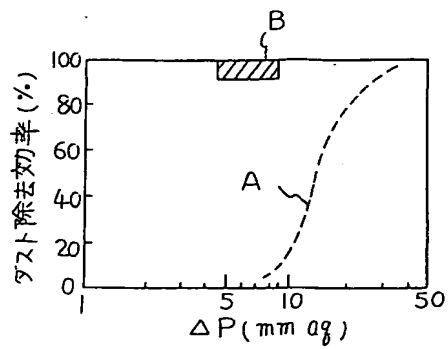
第2図



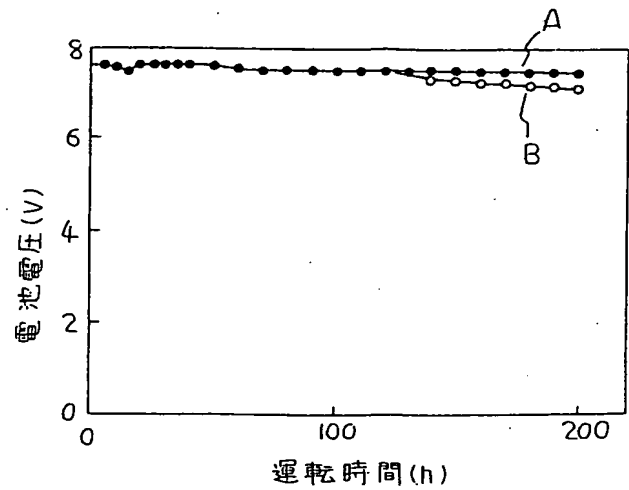
第3図



第4図



第5図



第1頁の続き

②発明者	熊谷	輝夫	日立市幸町3丁目1番1号 株式会社日立製作所日立研究所内
②発明者	北見	訓子	日立市幸町3丁目1番1号 株式会社日立製作所日立研究所内
②発明者	加茂	友一	日立市幸町3丁目1番1号 株式会社日立製作所日立研究所内
②発明者	田村	弘毅	日立市幸町3丁目1番1号 株式会社日立製作所日立研究所内